

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

BA

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 11140559 A

(43) Date of publication of application: 25.05.99

(51) Int. Cl

C22C 1/09

B22D 19/14

// H01L 23/14

(21) Application number: 09318888

(22) Date of filing: 05.11.97

(71) Applicant: FURUKAWA ELECTRIC CO LTD:THE

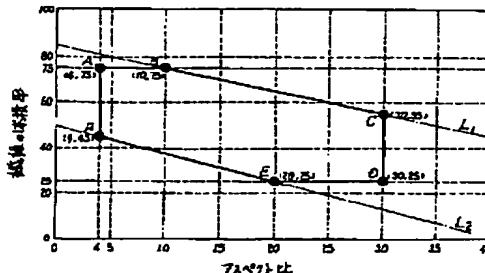
(72) Inventor: OKADA TAKAHIRO SAKATA MASATO

(54) COMPOSITE MATERIAL AND ITS PRODUCTION

(57) Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a composite material reinforced by fibers composed of carbon and/or graphite and having low thermal expansion coefficient in facial direction and to provide a method for producing it.

SOLUTION: This composite material composed of carbon and/or graphite-series fibers and a matrix of copper or a copper alloy is the one composed of carbon and/or graphite-series fibers and a matrix of copper or a copper alloy, and, as for the carbon and/or graphite-series fibers, the length thereof exceeds 40 μm , the aspect ratio and volume ratio lie in the range surrounded by the points A (4, 75), B (10, 75), C (30, 55), D (30, 25), E (20, 25) and F (4, 45) shown by the fig. 1, and, furthermore, they are oriented in the direction of the two-dimensional face at random. It has a low thermal expansion coefficient in the facial direction and is suitable as the material for a substrate for a semiconductor device.



COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-140559

(43)公開日 平成11年(1999)5月25日

(51) Int.Cl.⁸
C 22 C 1/09

識別記号

F I
C 22 C 1/09

G
B
C
M

B 22 D 19/14
// H 01 L 23/14

B 22 D 19/14
H 01 L 23/14

審査請求 未請求 請求項の数 6 FD (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平9-318888

(71)出願人 000005290

古河電気工業株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目6番1号

(22)出願日 平成9年(1997)11月5日

(72)発明者 岡田 貴弘

東京都千代田区丸の内2丁目6番1号古河
電気工業株式会社内

(72)発明者 坂田 正人

東京都千代田区丸の内2丁目6番1号古河
電気工業株式会社内

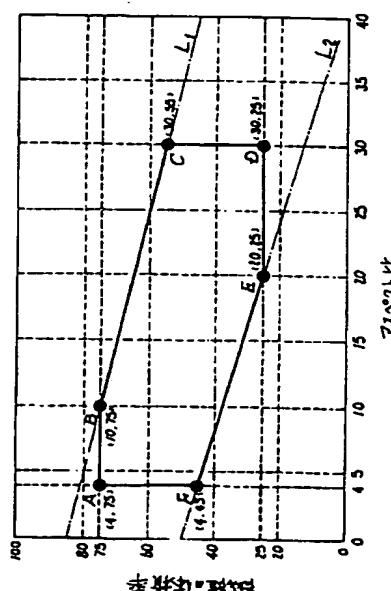
(74)代理人 弁理士 煤孫 耕郎

(54)【発明の名称】複合材料及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維によって強化され、面方向に低熱膨張係数を有する複合材料及びその製造方法を提供する。

【解決手段】炭素及び／又は黒鉛質の纖維と、銅もしくは銅合金からなるマトリックスにより構成され、前記炭素及び／又は黒鉛質の纖維は、その長さが $40\mu m$ を越えるもので、アスペクト比及び体積率が図1に示すA(4, 75)、B(10, 75)、C(30, 55)、D(30, 25)、E(20, 25)、F(4, 45)の点に囲まれた範囲であり、かつ2次元面方向にランダムに配向させたことを特徴とする炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料であり、面方向に低熱膨張係数を持ち半導体装置用基板の材料として好適なものである。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭素及び／又は黒鉛質の纖維と、銅もしくは銅合金からなるマトリックスにより構成され、前記炭素及び／又は黒鉛質の纖維は、その長さが $40\mu m$ を越えるもので、アスペクト比及び体積率が図1に示すA(4, 75)、B(10, 75)、C(30, 55)、D(30, 25)、E(20, 25)、F(4, 45)の点に囲まれた範囲内であり、かつ2次元面方向にランダムに配向させたことを特徴とする炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料。

【請求項2】 複合材料が、半導体装置用基板として用いられることを特徴とする請求項1に記載の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料。

【請求項3】 炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維とマトリックスの粉末からなる混合物の圧縮成型物を蛇腹状側壁の金属製カプセルに装填して脱気後密封し、熱間静水圧加圧により、前記圧縮成型物を密封した金属製カプセルを1軸方向に収縮させることを特徴とする請求項1又は2に記載の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法。

【請求項4】 金属製カプセルの蓋部分の肉厚が、蛇腹状金属製カプセルの側壁部の肉厚の2倍以上であることを特徴とする請求項3に記載の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法。

【請求項5】 圧縮成型物を蛇腹状側壁の金属製カプセルに装填し、スペーサーを入れ脱気後密封することを特徴とする請求項3に記載の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法。

【請求項6】 炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維とマトリックスの粉末からなる混合物の圧縮成型物が、銅の薄板もしくは箔で包まれていることを特徴とする請求項3乃至5のいずれかに記載の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料並びその製造方法に係り、特に面方向に低熱膨張係数を持ち半導体装置用基板の材料として好適な炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料並びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 セラミック等からなる強化材と金属を複合化し、双方の利点を有する様々な材料が開発され広く

実用化されている。そのうちの一つとして、炭素もしくは黒鉛質纖維と銅の複合材が挙げられる。この複合材料は、炭素の持つ潤滑性と銅のもつ高電気伝導性を活かした集電ブラシや、炭素もしくは黒鉛質纖維の持つ低熱膨張の特性と、銅の持つ高熱伝導性を活かした低熱膨張高熱伝導性の半導体装置用基板などに用いられている。

【0003】 半導体装置用基板としてこのような複合材料を使用する際、基板の少なくとも面方向の熱膨張係数を低くする必要があり、そのために面方向に熱膨張が低くなるよう人に為的炭素纖維を配置したものが知られている（従来例1、特公昭59-16406号公報、特公昭58-16615号公報）。

【0004】 また、炭素纖維のアスペクト比が200以上の比較的長い纖維を混合して固化し、等方的に配向させたものが知られている（従来例2、特公昭61-30013号公報）。また、 $40\mu m$ 以下という短い炭素纖維をマトリックスである銅もしくはA1の粉末と混合し加圧焼結して得られた半導体装置用放熱部材が提案されている（従来例3、特開平9-64254号公報）。また、A1もしくはA1合金の母相に炭素纖維を2次元方向に無秩序に配向させたものが提案されている（従来例4、特開平4-147654号公報）。

【0005】 また、複合材料の製法としては、従来より粉末冶金法が一般的で、金属粉末と炭素等の複合材料の製造にホットプレス法やHIP法がしばしば使われ、とりわけHIP法は、量産性に優れた方法といえる。HIP法で複合材料を製作する場合、混合物の圧縮成形体を金属製カプセルに入れ脱気した後密封し、高温高圧処理することにより複合材料の製作がなされるものである。

【0006】 このHIP法による複合材料の製作で大きな変形が行われた場合、金属製カプセルの胴体部や蓋の中心部が優先的に変形し、金属製カプセルの圧縮成形体に不均一な変形が生ずる。このようなHIP処理におけるカプセルの不均一な変形を防止することに関し、A1粉末と強化材粉末との混合体の成形において、カプセルの側壁部を蛇腹体とすることが知られている（従来例5、特許第2535401号公報）。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記従来例1では、長纖維を人為的に配置するのは製作に手間がかかり経済的とはいえないものであり、またこの長纖維を配置したものでは、Ag端付けなどによる高温の熱履歴を加えると局部的に極めて大きな内部応力が発生し、マトリックスがその内部応力に耐えられず材料が破損もしくは変形が生じる危険が大きいという問題があつた。

【0007】 上記従来例2では、纖維長がアスペクト比で200以上と比較的長い纖維を使用しており、ホットプレス法を用いると纖維を十分に面方向に配向させることはできず、且つ纖維が曲がったまま固化されやすくな

るため材料中に極めて大きな内部応力が蓄積されることとなり、上記従来例1と同様に熱履歴による材料の破損、変形の危険が大きく十分な信頼性があるとは言えないものである。

【0008】また、上記従来例3では、 $40\mu m$ 以下という短い纖維を用いているが、これでは各纖維の熱膨張係数低下効果が著しく低くなり所望の熱膨張係数を得るために極めて多量のカーボン纖維を必要とし、この場合高い熱伝導率を得るには黒鉛化度の高い高級な纖維を用いる必要があり、高コストであるという問題がある。また、上記従来例4では、A1の母相に炭素纖維を2次元方向に無秩序に配向させたものであるが、半導体装置用に適用した場合、十分な信頼性があるものとは言えないものである。

【0009】また、上記従来例5では、HIP処理のカプセル側壁部を蛇腹体することが示されているが、これはA1粉末と強化材粉末との混合体の成形についてのもので、カプセルの不均一変形を阻止すると同時に、銅もしくは銅合金からなるマトリックス中の炭素及び／又は黒鉛質纖維の配向を揃えるという作用については開示されていないものである。

【0010】本発明は、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維によって強化され、面方向に低熱膨張係数を有し、特に半導体装置用基板の材料として好適な炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料並びその製造方法を提供するものである。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明は、炭素及び／又は黒鉛質の纖維と、銅もしくは銅合金からなるマトリックスにより構成され、前記炭素及び／又は黒鉛質の纖維は、その長さが $40\mu m$ を越えるもので、アスペクト比及び体積率が図1に示すA(4, 75)、B(10, 75)、C(30, 55)、D(30, 25)、E(20, 25)、F(4, 45)の点に囲まれた範囲内であり、かつ2次元面方向にランダムに配向させたことを特徴とする炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料である。

【0012】本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料は、そのアスペクト比及び体積率が、好ましくは、図2のH(5, 70)、I(15, 60)、J(20, 60)、K(20, 40)、L(10, 40)、M(5, 50)の点に囲まれた範囲内であることを特徴とするものである。なお、本発明において、体積率とは、(炭素及び／又は黒鉛質の纖維の体積)／(炭素及び／又は黒鉛質の纖維の体積+マトリックスの銅もしくは銅合金の体積)である。

【0013】また本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料は、マトリックスが銅もしくは、さらにMo, W, C

r, Ag、セラミック粒子の1種又は2種以上を含む銅合金であることを特徴とするものである。また本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料は、半導体装置用基板として用いられることを特徴とするものである。

【0014】また本発明は、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維とマトリックスの粉末からなる混合物の圧縮成型物を蛇腹状側壁の金属製カプセルに装填して脱気後密封し、熱間静水圧加圧により、前記圧縮成型物を密封した金属製カプセルを1軸方向に収縮させることを特徴とする炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法である。

【0015】また本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法は、金属製カプセルの蓋部分の肉厚が、蛇腹状金属製カプセルの側壁部の肉厚の2倍以上であることを特徴とするものである。また本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法は、圧縮成型物を蛇腹状側壁の金属製カプセルに装填し、スペーサーを入れ脱気後密封することを特徴とするものである。

【0016】また本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法は、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維とマトリックスの粉末からなる混合物の圧縮成型物が、銅の薄板もしくは箔で包まれていることを特徴とするものである。

【0017】さらに、本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造方法は、熱間静水圧加圧が、 $800^{\circ}C$ 以上で、銅もしくは銅合金の融点以下の温度で行われることを特徴とするものである。

【0018】

【作用】本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料によれば、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維によって強化され、面方向に低熱膨張係数を有し、また焼結固化による内部応力が小さく、熱履歴による変形、破損の危険がないものである。また、本発明は、炭素及び／又は黒鉛質の纖維が2次元面方向にランダムに配向しているので、収縮軸に垂直な面方向の熱膨張係数は低い値をとることができ、高熱伝導性の黒鉛化率の高い黒鉛質纖維を用いることにより、この方向に高熱伝導とすることができるので、この面に対し平行な向きに材料を切り出せば半導体装置用基板として好適な製品を得ることができる。

【0019】また、本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料の製造は、熱間静水圧加圧(HIP法)で蛇腹状側壁の金属製カプセルを用い、1軸方向に収縮させるので、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維を収縮方向に対して垂

直な方向に配向させることができるものである。

【0020】本発明の複合材料は、マトリックスとして銅もしくは銅合金を用いるので、熱伝導性が良好である。またマトリックスがA1の複合材料の場合は、炭素、黒鉛の繊維とA1との界面に、A14C3等の有害な炭化物が形成され、温度サイクル時に界面で剥離しやすく、炭素、黒鉛繊維による熱膨張低下効果が充分に得られず、信頼性の点で問題があるが、銅もしくは銅合金のマトリックスではかかる問題がない。さらに、パッケージと放熱基板とのAgろう付けが可能な耐熱性を有し、セラミックスパッケージに対する放熱基板としても有用なものである。

【0021】本発明の炭素及び／又は黒鉛質繊維のアスペクト比及び体積率の限定理由を説明する。図1は、横軸にアスペクト比、縦軸に炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維の体積率を示し、炭素及び／又は黒鉛質の繊維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料のアスペクト比と体積率の関係を示す図である。本発明の炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維のアスペクト比及び体積率は、図1に示すA(4, 75)、B(10, 75)、C(30, 55)、D(30, 25)、E(20, 25)、F(4, 45)の点に囲まれた範囲内である。

【0022】アスペクト比とは、繊維長／繊維径である。本発明のアスペクト比の限定理由は、アスペクト比が4より小さい炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維は、作製が困難でありコスト高になるのでアスペクト比4以上のものを用いた。またアスペクト比が30を越えると複合材料を焼結固化した際に蓄積される内部応力が大きくなりすぎ、熱履歴による変形、破損の危険が大きいので30以下に限定した。

【0023】体積率の限定理由は、炭素及び／又は黒鉛質繊維の体積率が、75%を越えると焼結固化が困難となり、たとえ焼結できても脆くなり、複合材料としての特性が得られず、特に半導体装置用基板として要求される特性を満たすことはできない。また体積率が、25%より小さいと熱膨張係数が大きくなりすぎて適当ではないので体積率は25%以上75%以下に限定される。

【0024】さらに、これらの条件を満たしても、図1における線L1(一点鎖線)より上部の領域では、焼結固化した際の内部応力が大きくなるため、熱履歴により変形、破壊を生じるため適当でない。また線L2(一点鎖線)より下部の領域では熱膨張係数を小さくすることはできない。特に半導体装置用基板として適当な熱膨張係数の値まで下げるることはできない。このような理由により図1に示すA(4, 75)、B(10, 75)、C(30, 55)、D(30, 25)、E(20, 25)、F(4, 45)の点に囲まれた領域に炭素及び／又は黒鉛質繊維のアスペクト比及び繊維の体積率を特定した。特に好ましいのは、アスペクト比と体積率

の関係を示す図2のH(5, 70)、I(15, 60)、J(20, 60)、K(20, 40)、L(10, 40)、M(5, 50)の点に囲まれた領域である。

【0025】また、2次元面方向に繊維を無秩序に配向させるのは、それにより内部応力の集中が問題になるような長い繊維を用いなくても、アスペクト比と体積率で規定される最小の繊維量で所定の低熱膨張が得られるからである。図3は、本発明の複合材料の概要を示す図10で、複合材料(2)は、銅もしくは銅合金からなるマトリックス(3)に、炭素及び／又は黒鉛質繊維(1)が2次元面方向にランダムに配向されているものである。

【0026】本発明の複合材料は、面方向で低い熱膨張係数が得られるものである。半導体装置用基板として適用するときは、半導体装置の形態にもよるが熱膨張係数は5~11 ppm/°Cが適当であり、その中でも7.0~9.0 ppm/°Cが好ましいものであり、本発明の複合材料の面方向の低熱膨張係数はかかる要求に対応できるものである。

20 【0027】

【発明の実施の形態】本発明の炭素及び／又は黒鉛質繊維のアスペクト比及び体積率について上述したが、炭素及び／又は黒鉛質の繊維の径は、5~20 μmのものが用いられ、好ましくは8~12 μmのものである。その長さが40 μmを越えるものである。なお、繊維の平均長さの上限はそのアスペクト比(繊維長／繊維径)で定まる。

【0028】また、本発明のマトリックスは銅もしくは銅合金である。マトリックスとしては銅のみでもよいが、銅もしくは銅に、さらにMo, W, Cr, Ag, セラミック粒子の1種又は2種以上を添加した銅合金を用いてよい。用途に応じて、例えば強度の上昇を意図してMo, W, Cr等の高融点金属の1種又は2種以上を添加する。またセラミック粒子を添加する。また耐熱性を向上させるためにAgなどを添加してもよい。

【0029】本発明の複合材料の製造方法は、炭素もしくは黒鉛質からなる繊維を、マトリックスをなす銅を主とする粉末と共にボールミル等の手法で混合する。また、マトリックスとして、CuにMo, W, Cr, Agの粉末の1種又は2種以上を、またはセラミック粒子を添加し、ボールミル等の手法で混合して得た原料混合物を圧粉型に入れプレスして混合物の圧縮成型物を得る。

【0030】炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維とマトリックスの粉末からなる混合物の圧縮成型物をHIP(熱間静水圧加圧)法を用いて焼結固化させる工程について図面を参照して説明する。図4~図6は、本発明の圧縮成型物をHIPで焼結固化させる工程を示すもので、まず図4に示すように、炭素及び／又は黒鉛質の繊維(1)とマトリックスの粉末(7)との圧縮成型物(8)を側壁を蛇腹体(9)で構成される金属製カプセル

ルに装填し、蓋(11)(12)と蛇腹体(9)を真空中で電子ビーム溶接するなどして真空密封する。

【0031】側壁を蛇腹体(9)で構成される金属製カプセルの材料としては、主に、ステンレス鋼が用いられる。ステンレス鋼の中でもSUS304が接性の点から望ましい。また蛇腹体(9)と、蓋(11)(12)は同一の材料で構成することが好ましい。また、側壁を蛇腹体で構成される金属製カプセルは、円筒状、角筒状いずれでもよい。加圧の均一性という点では円筒状が好ましく、ビレットから所定の部材を得る際の歩留まりという点では角筒状が好ましい。また、金属製カプセル側壁の蛇腹体は、円弧状のものを図示したが、これに限るものではなく、三角状の蛇腹でもよい。

【0032】また、炭素もしくは黒鉛質からなる纖維の体積率が大きくなると、圧縮成型物の保形性が失われる所以、銅薄板もしくは箔で包むことが好ましい。例えば、予め圧粉用型の内面に沿って銅箔(13)を敷き詰め、その中に炭素もしくは黒鉛質からなる纖維(1)とマトリックス粉体(7)の混合物を充填し圧粉することにより圧粉体の圧縮成型物(8)が銅箔(13)に包まれた形態をとるようにして保形性を与えるようにして、図5に示すように、側壁を蛇腹体(9)で構成される金属製カプセルに装填し、蓋(11)(12)をして真空密封することが好ましい。

【0033】次いで、図6に示すように、側壁が蛇腹体(9)の金属製カプセルに装填され、蓋(11)(12)で真空密封された圧縮成型物(8)をHIP処理する。金属製カプセル側壁の蛇腹体(9)は、その胴体の軸方向に収縮する。収縮が進行すると、金属製カプセル胴体の軸に垂直な面方向の強度は増すが、さらに軸方向に収縮が進行する。この結果軸に垂直な面内ではどこでも同じ加圧収縮が起こるので、この面内では炭素もしくは黒鉛質からなる纖維(1)の体積比、配向は同じとなる。このように加圧し1軸方向に収縮させることにより、炭素もしくは黒鉛質からなる纖維(1)は収縮軸方向に垂直な面内に配向し、マトリックス(3)に、炭素及び／又は黒鉛質纖維(1)が2次元面方向にランダムに配向されているものとなり、本発明の複合材料が容易に且つ高い歩留まりで得ることができる。

【0034】本発明の複合材は、加圧し1軸方向に収縮させることにより、マトリックス(3)に、炭素及び／又は黒鉛質纖維(1)が2次元面方向にランダムに配向されているものであるが、これについて図7(a) (b)で検討した。図7(a)に示すように、金属製カプセル(23)に炭素、黒鉛質の纖維(1)とマトリックスの粉末(20)との圧縮成型物を装填し、蓋(21)(22)で真空密封する。これにHIP処理を行ったところ、図7(b)に示すように、金属製カプセル(23)及び蓋(21)(22)の中心部が優先的に変形し、その変形状況に応じて、纖維(1)の配向が全

体的に大きくばらついた。

【0035】そこで、本発明の複合材料の製造では、蛇腹状側壁の金属製カプセルを用いて、熱間静水圧加圧(HIP法)で1軸方向に収縮させ、炭素及び／又は黒鉛質からなる纖維を収縮方向に対して垂直な方向に配向させるものである。また、蛇腹状側壁の金属製カプセルを用いても、カプセル変形の不均一が発生することもある。例えば図8に示すように、圧縮成型物のHIP処理により、側壁が蛇腹体(9)の金属製カプセルに装填され、蓋(17)(18)で真空密封された圧縮成型物は、側壁が蛇腹体(9)からなる胴体の軸方向に収縮するが、蓋(17)(18)の中心部が変形し、纖維

(1)の配向が全体的にはばらつくことがある。このようないくつかの不均一変形の発生に対応するために、金属製カプセルの蓋を、側壁をなす蛇腹体の肉厚の2倍以上とすることにより、蓋よりも側壁をなす蛇腹体を優先的に変形させ、十分に充填密度を上げる。このようにすると、十分に充填密度が上がるまで蓋に大きな圧力がかかるのが防止できるので蓋のへこみを抑制できる。

【0036】金属製カプセルの蓋を側壁蛇腹体の肉厚の2倍以上の厚さにする変わりにスペーサーを用いてよい。例えば、図9に示すように、炭素及び／又は黒鉛質の纖維(1)とマトリックスの粉末(7)との銅箔(13)で包まれた圧縮成型物(8)を側壁蛇腹体(9)の金属製カプセルに装填し、スペーサー(14)を入れ、蓋(11)(12)をして真空密封する。スペーサーの材質としては無酸素銅、黒鉛が好ましい。これをHIP処理すると図10に示すように、金属製カプセルの側壁蛇腹体(9)は1軸方向に収縮し、マトリックス(3)

に、炭素及び／又は黒鉛質纖維(1)が2次元面方向にランダムに配向されたものとなる。また、図9では、金属製カプセルに挿入されるスペーサーを圧縮成型物の上に配置しているが、圧縮成型物の上、下に配置してもよい。

【0037】本発明の炭素及び／又は黒鉛質の纖維と銅もしくは銅合金のマトリックスよりなる複合材料を半導体装置用基板として用いる場合について図11を参照して説明する。本発明の複合材料は、炭素及び／又は黒鉛質の纖維が2次元面方向にランダムに配向されているもので、このような複合材料を半導体基板の面方向に纖維が配向しているようにして半導体装置用に適用する。

【0038】具体的には図11に示すように、本発明の複合材料を基板の面方向に纖維が配向しているように切り出し所定の形状に加工し、半導体装置用基板(4)として用いる。半導体装置用基板(4)には、必要に応じてNi、Au、Pd、などからなるめっき層を形成し、その上に半導体素子(6)を搭載する。また半導体装置用基板(4)は、アルミナやコバルトなどからなるパッケージの外囲器(5)と接合する。

【0039】このように本発明の複合材料を半導体装置

用基板として用いるが、アスペクト比、纖維体積率を制御することにより、各種半導体パッケージ材料と接合するのに好適な熱膨張係数とことができる。それ故、該基板とアルミナやコバールなどからなるパッケージの外囲器と接合する際の熱膨張差に起因する反り等を抑制でき、またガラスセラミックなどからなる端子と反り等発生することなく接合できる。また発熱する半導体チップとの間に発生する熱応力も緩和できるため、信頼性の高い半導体装置が得られる。

【0040】

【実施例1】本発明の第1の実施例を図5、図6及び表1、表2を参照して説明する。まず、纖維径 $10\mu\text{m}$ 、平均纖維長 $200\mu\text{m}$ の黒鉛質纖維、及び平均径 $20\mu\text{m}$ の銅粉を用い、黒鉛質の纖維の体積率が50%になるように、所定重量の纖維、銅粉を秤量して配合し、ボルミルにて混合し、これを予め内壁に沿って厚さ $35\mu\text{m}$ の銅箔を敷き詰めた金型に入れ、 $1\text{t}/\text{cm}^2$ の圧力を乾式プレスして圧縮成型物を形成した。この圧縮成型物の充填率(圧縮成型物の体積の内、纖維と銅粉の混合物が占める割合)は40%程度であった。

【0041】次いで、上述のように形成した圧縮成型物を図5に示すように金属製カプセルに装填する。銅箔(13)に包まれた黒鉛質纖維(1)とマトリックスとなる銅粉(7)の圧縮成型物(8)を、内径 65mm 、肉厚 0.6mm 、蛇腹のピッチ 10.0mm で、材質がSUS304からなる蛇腹状側壁(9)を有する金属製カプセルの中に入れ、これの端面に厚さ 2mm の蓋(11)(12)を真空中で電子ビーム溶接することにより、真空封入した。

【0042】次いで、 1500気圧 、 1000°C 2hの*30

密度(g/cm^3)				
中心からの距離(cm)	0	1	2	3
実施例	5.55	5.55	5.55	5.55
比較例	5.55	5.55	5.53	5.49

[表2]

熱伝導率(W/mK)				
中心からの距離(cm)	0	1	2	3
実施例	390	387	392	389
比較例	391	381	365	339

【0045】表1から明らかなように、実施例1ではサンプル採取位置が、中心からの距離が 0cm 、 1cm 、 2cm 、 3cm のいずれも、密度が $5.55(\text{g}/\text{cm}^3)$ で一定である。これに対し、比較例では密度にはばらつきが生じている。また、表2に示す熱伝導率も、実施例1ではサンプル採取位置によらず、ほぼ一定である。これに対して比較例は、ばらつきが生じている。

【0046】これら表1、表2の結果より、実施例1ではサンプル採取位置によらず、密度が一定であることから纖維とマトリックスの銅の体積比は一定といえる。ま

*条件でHIP処理した。図6に示すように、HIP処理により金属製カプセルの蛇腹状側壁(9)は、その円筒の軸方向に沿って一様に潰れて、圧縮成型物は1軸方向に収縮された。圧縮成型物(8)の高さ約 60mm のものが、1軸方向に収縮され、高さ約 25mm の纖維強化複合材料が得られた。また、黒鉛質纖維(1)は銅のマトリックス(3)に2次元面方向にランダムに配向されていた。

【0043】比較例として、図7(a)(b)に示すようにHIP処理を行ってみた。上記実施例1と同様に、

10 圧縮成型物を形成し、黒鉛質纖維(1)とマトリックスとなる銅粉(20)の圧縮成型物を、内径 65mm 、肉厚 0.6mm の円筒状の金属カプセル(23)に入れ、蓋(21)(22)で同様に真空密封した。これを 1500気圧 、 1000°C 2hの条件でHIP処理した。処理終了後、これらをHIP装置から取り出したところ、図7(b)に示すように金属カプセル(23)、及び蓋(21)(22)の中心部分が大きくへこみいびつな形となり、その変形状況に応じて、纖維(1)の配向が全体的に大きくばらついていた。

【0044】上記実施例1及び比較例の複合材料について中心から 1cm ごとに直径 9mm 厚さ 4mm のサンプルを採取した。なお、サンプルは、HIP処理の金属製カプセルの円筒軸方向と垂直になるよう採取したものである。表1は、実施例1及び比較例のサンプルの密度(g/cm^3)を測定したものであり、表2は、レーザーフラッシュ法にて熱伝導率(W/mK)を測定したものである。

【表1】

た、熱伝導率が一定であることから、サンプルの採取位置によらず、圧縮軸と垂直な向きではどこでも纖維の配向状態が同じであると言える。それに対し、比較例では、密度にもばらつきが生じ、熱伝導率にはさらに多くのばらつきが生じた。このことから図7(b)に示すように、カプセルのいびつな変形により纖維の体積比、配向がサンプル採取位置により大きく異なっていることが判る。

【0047】この実施例1のサンプルを酸を用いて溶解し、平均のアスペクト比を求めたところ、 10.2 であ

11

った。なお、原料の黒鉛質繊維は、繊維径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 、平均繊維長 $200\text{ }\mu\text{m}$ のものであるが、ボールミルでの混合、乾式プレスによる圧縮成型、またはHIP等により得られた複合材料の平均アスペクト比は、10.2のものであった。

【0048】

【実施例2】第2の実施例を図12(a) (b) 及び図13(c) (d) を参照して説明する。図12(a) (b) 及び図13(c) (d)において、横軸はアスペクト比、縦軸は炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維体積率である。炭素質の繊維として繊維径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 、Cu-20v/o 1%Mo合金をマトリックスとして実施例1と同様の製法で、様々なアスペクト比、様々な体積率を持つ複合材料を作製した。これを還元雰囲気中 850°C で2h熱処理し、その変形挙動を調査した。またその熱膨張係数を測定し適当な値(5~11ppm)であるかを調査した。これらを総合して各複合材料が半導体装置用基板として適当な特性を備えているか調べた。

【0049】図12(a)は、作製した複合材料を○印で示したものである。図12(b)は、熱処理による変形挙動を示したもので、○印は変形しないもの、もしくは変形が軽微なものであり、×印は著しく変形したものの、もしくは破壊したものである。図13(c)は、熱膨脹による変形挙動を示したもので、○印は適当な値(5~11ppm)のもの、×印は高すぎるか、低すぎるものである。図13(d)は、総合評価結果を示したもので、○印は半導体装置用基板として適するもの、×印は半導体装置用基板として不適なものである。図12(a) (b) 及び図13(c) (d)に示す結果から明らかなように、本発明で特定されている範囲内のアスペクト比及び体積率を持つ場合のみ好適な特性を併せ持つことが判る。

【0050】

【実施例3】第3の実施例を図11を参照して説明する。繊維径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 、平均繊維長 $200\text{ }\mu\text{m}$ の黒鉛質の繊維と平均径 $10\text{ }\mu\text{m}$ の銅粉を、黒鉛質繊維の体積率が60%になるように配合し、実施例1と同様に複合材料を作製した。実施例1と同様にアスペクト比を求めたところ7.5であった。この複合材料を黒鉛質繊維の配向面が面方向となるように切り出し基板とし、図11に示すように、半導体装置用基板(4)にアルミナからなる外囲器(5)をA g 蝶付けした。この際、基板(4)に*

12

*反り等は見られなかった。さらに、これに半導体素子(6)を取り付け、 $-40^\circ\text{C} \leftrightarrow 125^\circ\text{C}$ の温度サイクルを500サイクルかけた。その結果、半導体素子(6)の基板(4)からの剥離は認められなかった。

【0051】

【実施例4】第4の実施例を、図5~図10及び表3、表4を参照して説明する。上述した実施例1と同様に原料混合物を混合して圧縮成型物を形成し、実施例1と同様のHIP処理をした。1つは(表3、表4の「蓋厚み2.0mm」)、図5に示すように、圧縮成型物を側壁が内径 150 mm 、肉厚 1.0 mm 、ピッチ 15 mm の蛇腹体筒(9)からなる金属製カプセルに入れ、厚みが 2.0 mm の蓋(11)(12)をして真空封入した。

【0052】もう1つは(表3、表4の「蓋厚み0.6mm+スペーサー」)、図9に示すように、圧縮成型物を側壁が内径 150 mm 、肉厚 1.0 mm 、ピッチ 15 mm の蛇腹体筒(9)からなる金属製カプセルに装填し、無酸素銅からなる厚さ 10 mm のスペーサー(14)を入れ、厚みが 0.6 mm の蓋(11)(12)をして真空封入した。さらに(表3、表4の「蓋厚み0.6mm」)、図8に示すように、圧縮成型物を側壁が内径 150 mm 、肉厚 1.0 mm 、ピッチ 15 mm の蛇腹体筒(9)からなる金属製カプセルに入れ、厚みが 0.6 mm の蓋(17)(18)をして真空封入した。なお、いずれも場合も、蛇腹体の金属製カプセル及び蓋の材質はSUS304を用いた。

【0053】HIP処理を行った結果、図5に示す「蓋厚み2.0mm」の場合は、図6に示すように蓋(11)(12)は互いに平行であり、へこみ等は見られず、圧縮成型物は1軸方向に収縮した。また、図9に示す「蓋厚み0.6mm+スペーサー」の場合は、蓋の厚みは 0.6 mm であるが、厚さ 10 mm のスペーサーを入れたので、図10に示すように、へこみ等は発生しなかった。これに対して、「蓋厚み0.6mm」では、図8に示すように、蓋(17)(18)の中心部が変形した。その変形は蓋(17)(18)の中央部が周辺部に対し約 3 mm 陥没していた。

【0054】これらの材料について、上記実施例1と同様にサンプルを採取し、密度及び熱伝導率を測定した。表3は密度(g/cm^3)、表4は熱伝導率(W/mK)を示したものである。

【表3】

密度(g/cm^3)				
中心からの距離(cm)	0	1	2	3
蓋厚み2.0mm	5.55	5.55	5.55	5.55
蓋厚み0.6mm + スペーサー	5.55	5.55	5.55	5.55
蓋厚み0.6mm	5.55	5.55	5.54	5.52

【表4】

熱伝導率(W/mK)		0	1	2	3
中心からの距離(cm)					
蓋厚み2.0mm	390	387	392	389	
蓋厚み0.6mm + スペーサー	392	389	387	390	
蓋厚み0.6mm	391	388	378	365	

【0055】表3、表4の結果より、「蓋厚み2.0m」、「蓋厚み0.6mm+スペーサー」はサンプル採取位置によらず、密度が一定であることから繊維とマトリックスの銅の体積比は一定であり、圧縮軸と垂直な向きではどこでも繊維の配向状態が同じであり、熱伝導率が一定であると言える。これらに対し、「蓋厚み0.6mm」のへこみが発生したものでは、密度にもばらつきが生じ、熱伝導率にもばらつきが生じた。

【0056】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の複合材料及びその製造方法によれば、炭素及び／又は黒鉛質からなる繊維によって強化され、面方向に低熱膨張係数を有し、また焼結固化による内部応力が小さく、熱履歴による変形、破損の危険がないという効果を奏するものである。

【図面の簡単な説明】

- 【図1】本発明のアスペクト比及び体積率の関係を示す図
- 【図2】本発明のアスペクト比及び体積率の関係を示す図
- 【図3】本発明の複合材料の概要を示す図
- 【図4】本発明の実施態様及び実施例を説明する図
- 【図5】本発明の実施態様及び実施例を説明する図

【図6】本発明の実施態様及び実施例を説明する図

【図7】比較例を示す図

【図8】比較例を示す図

【図9】本発明の実施態様及び実施例を説明する図

【図10】本発明の実施態様及び実施例を説明する図

【図11】本発明の実施態様及び実施例を説明する図

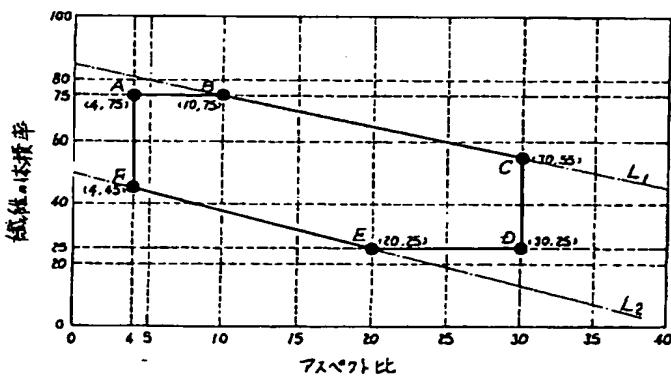
【図12】本発明の実施例のアスペクト比及び体積率の関係を示す図

【図13】本発明の実施例のアスペクト比及び体積率の関係を示す図

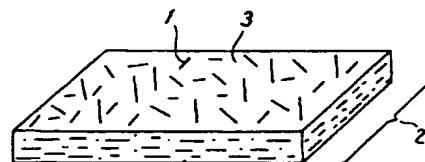
【符号の説明】

- 1 炭素もしくは黒鉛質からなる繊維
- 2 複合材料
- 3 マトリックス
- 4 半導体装置用基板
- 5 半導体装置の外囲器
- 6 半導体素子
- 7 マトリックスの粉末
- 8 圧縮成型物
- 9 蛇腹体
- 11、12 蓋
- 13 銅箔
- 14 スペーサー

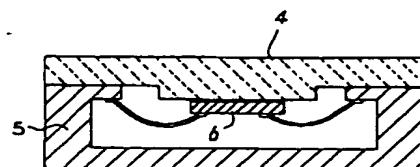
【図1】



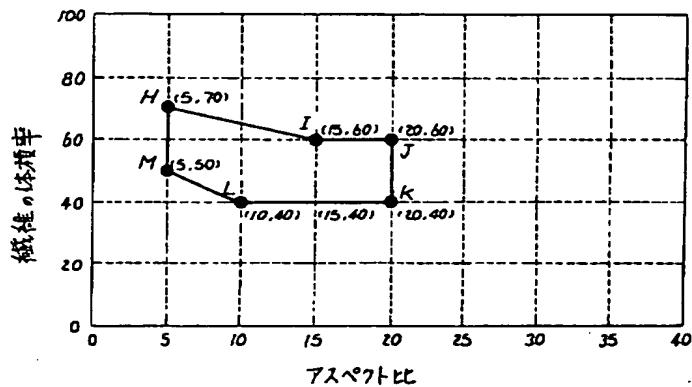
【図3】



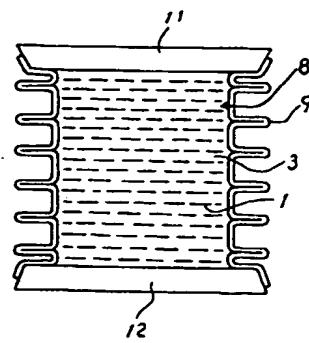
【図11】



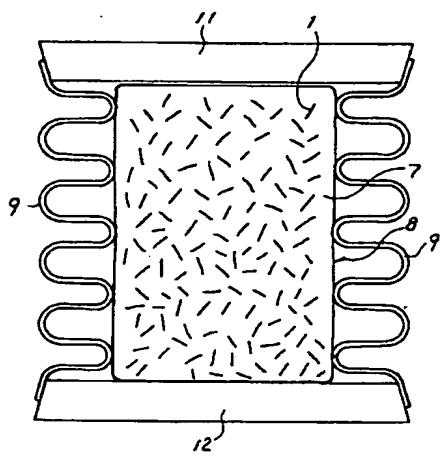
【図2】



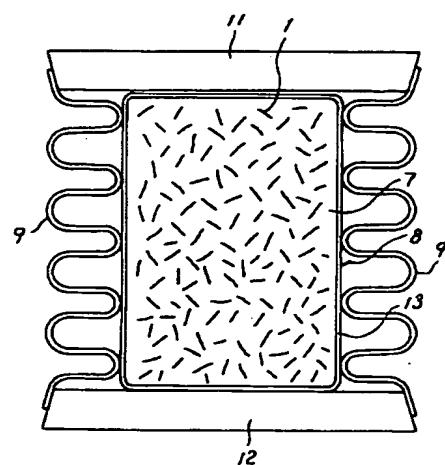
【図6】



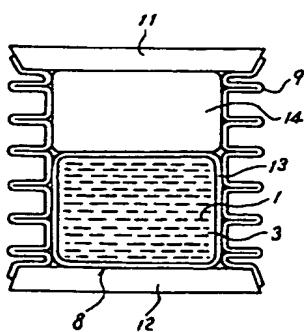
【図4】



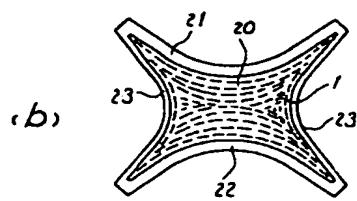
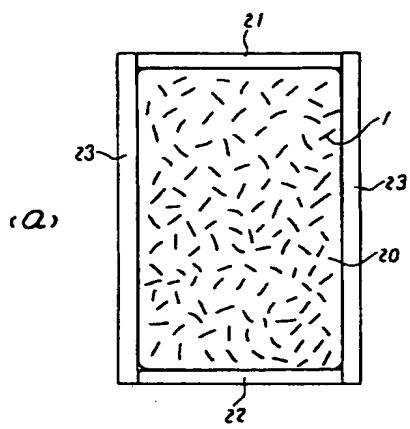
【図5】



【図10】

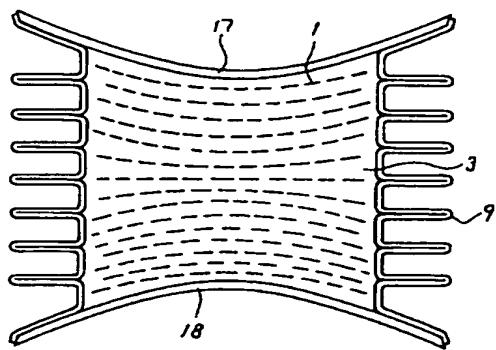


【図7】

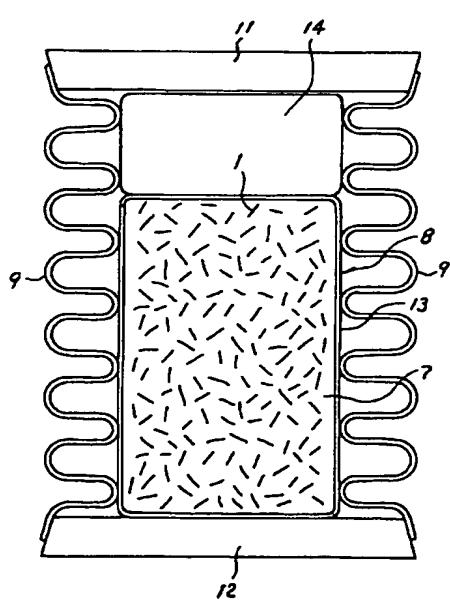
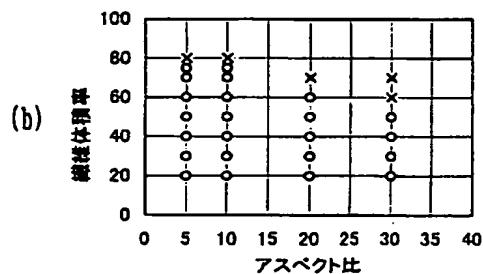
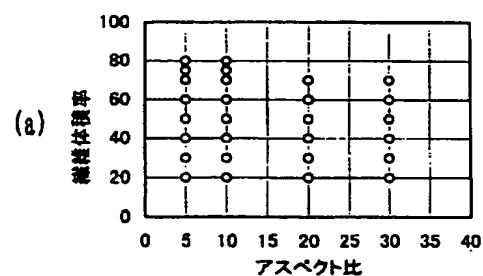


【図9】

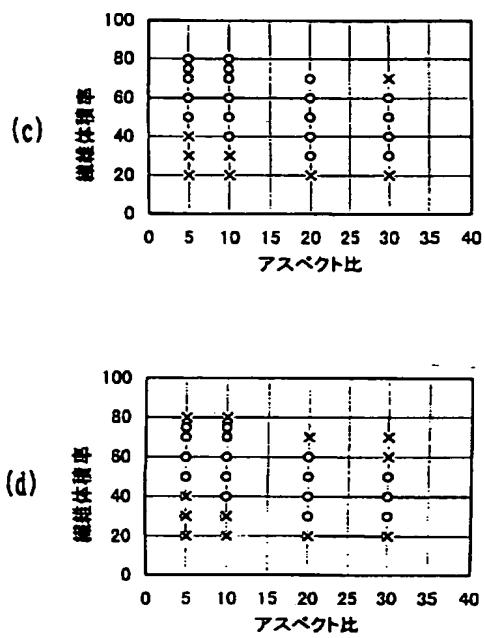
【図8】



【図12】



【図13】



Abridged Translation of Japanese Laid-Open Patent Publication
No. 11-140559 (Published on May 25, 1999)

Japanese Patent Application No. 09-318888
(Filed on November 5, 1997)

[Paragraph 26]

The composite material of present invention has a low thermal expansion coefficient in the direction of the two dimensional surface of the composite material. If the composite material is used for a substrate of a semiconductor device, the suitable thermal expansion coefficient is 5 through 11 ppm/ $^{\circ}$ C. More preferably, the thermal expansion coefficient is 7.0 through 9.0 ppm/ $^{\circ}$ C. Accordingly to the present invention, the thermal expansion coefficient is sufficiently low to meet the requirement.

[Paragraph 28]

The matrix in the composite material of the invention is composed of copper or copper alloy. The matrix may only be composed of copper. Alternatively, the matrix may be composed of copper alloy adding one or more element of Mo, W, Cr, Ag, ceramic particle or the like to copper. That is, the copper alloy may contain one or more metal having a high melting point such as Mo, W and Cr in order to increase a mechanical strength of the composite material. The copper alloy may contain ceramic particle. The copper alloy may contain Ag or the like in order to increase a thermal resistance of the composite material.

[Paragraph 40]

[First embodiment]

Referring to Figs. 5 and 6, and Tables 1 and 2, the first embodiment of present invention is described. A graphite fiber having 20 μ m in diameter and 200 μ m in mean length is used as a fiber of a composite material. A copper powder having 20 μ m in mean diameter is used as a copper powder of the composite material. A predetermined weight of the fiber and the copper

powder is weighed and prepared so that the fiber is 50 % of volume fraction in the composite material. Then, the fiber and the copper powder are mixed by a ball mill. A mixture of the fiber and the copper powder is introduced into a die of which a copper foil is provided on the surface of inner wall. The copper foil is 35 μm in thickness. Then a compressive molding is formed by dry press to the mixture under 1 t/cm² of pressure. The compressive molding has about 40 % of filling factor(a rate of the mixture to volume of the compressive molding).

[Paragraph 41]

Then, the compressive molding is loaded into a metal capsule as shown in Fig. 5. After the compressive molding (8) composed of the graphite fiber (1) and the copper powder (7) as the matrix and covered with a copper foil (13) is loaded into the metal capsule including a bellows-like side wall (9) which is 65 mm in inner diameter, 0.6 mm in thickness and 10.0 mm in a pitch of bellows thereof and is made of SUS 304, then lids (11), (12) are provided to opposite sides of the metal capsule. When each of the lids (11), (12) is welded by an electron beam welding under vacuum condition, the metal capsule is sealed in vacuum.

[Paragraph 42]

An HIP processing to the compressive molding (8) is performed under a condition maintaining 1500 atm of pressure and 1000 °C of temperature during 2 hours in the metal capsule, then the bellows-like side wall (9) of the metal capsule is crushed uniformly along the direction of a cylindrical axis of the bellows-like side wall (9) and the compressive molding is therefore contracted in the direction of one axis. That is, the fiber reinforced composite material having 25 mm in height is obtained by contracting in the direction of one axis of the compressive molding (8) having 60 mm in height. In the fiber reinforced composite material, the graphite fiber (1) is oriented at random to the copper matrix (3) in the direction of two dimensional surface thereof.